

ПОДХОД К ОПИСАНИЮ ПРОЦЕССА ВЫТЕКАНИЯ ЖИДКОЙ ФАЗЫ ИЗ СРЕДЫ С ОТКРЫТОЙ ПОРИСТОСТЬЮ И СОДЕРЖАЩЕЙ В ПОРАХ ЖИДКОСТЬ

APPROACH TO THE DESCRIPTION OF PROCESS OF THE EFFLUENCE OF THE LIQUID PHASE FROM THE ENVIRONMENT WITH OPEN POROSITY AND CONTAINING IN THE PORES LIQUID

Логинов Ю.Н.

Уральский федеральный университет, г. Екатеринбург, unl@mtf.ustu.ru

Stress environment with open porosity and containing liquid in the pores investigated. As an example of such a process is a variant of the manufacture of high coercivity magnet alloy Pr-Fe-B by hot deformation.

На стыке технологий обработки металлов давлением и литейного производства оказались вопросы изучения поведения структурно неоднородных систем, содержащих одновременно жидкую и твердую фазы. В литейном производстве определенные позиции завоевал способ штамповки деталей из расплава, в том числе содержащего твердую фазу. Такая система описывается с позиций гидравлики, поскольку соотношение объемов между твердой и жидкой фазами оказывается в пользу последней. Исходным состоянием объекта для обработки здесь является расплав металла, принимающий форму изложницы.

Иная ситуация возникает при рассмотрении деформации заготовки, имеющей жестко-пластический пористый скелет, пропитанный жидкостью: расплавом фазы с меньшей, чем материал скелета температурой плавления, сама деформация осуществляется выше этой температуры (рис.1). Пример такого процесса в промышленности: высокотемпературная деформация заготовки из твердого сплава, представляющего собой смесь тугоплавкого карбида вольфрама и легкоплавкого кобальта в

присутствии жидкой фазы кобальта с частично растворенным карбидом вольфрама [1,2].

Другим примером является деформация заготовок сплавов R-Fe-B (R - редкоземельный металл, например, неодим или празеодим) при температурах выше температуры плавления (480-600°C) немагнитной фазы, окружающей зерна основной магнитной фазы $R_2Fe_{14}B$ [3].

Экспериментально установлено [3,4], что при деформации происходит поворот осей легкого намагничивания вдоль направления сжатия и выжимание жидкой фазы на периферию образца. В работе [5] было отмечено, что жидкая фаза неоднородно распределена по объему заготовки, однако требуется более полное описание механизма перераспределения жидкой фазы в процессе деформации. Это представляется крайне важным для оптимизации магнитных свойств, поскольку при избытке жидкой фазы снижается полная намагниченность (жидкая фаза немагнитна), а при недостатке ее на границах зерен основной фазы при стехиометрии 2:14:1 снижается коэрцитивная сила - второй параметр, определяющий уровень магнитных свойства этой группы сплавов.

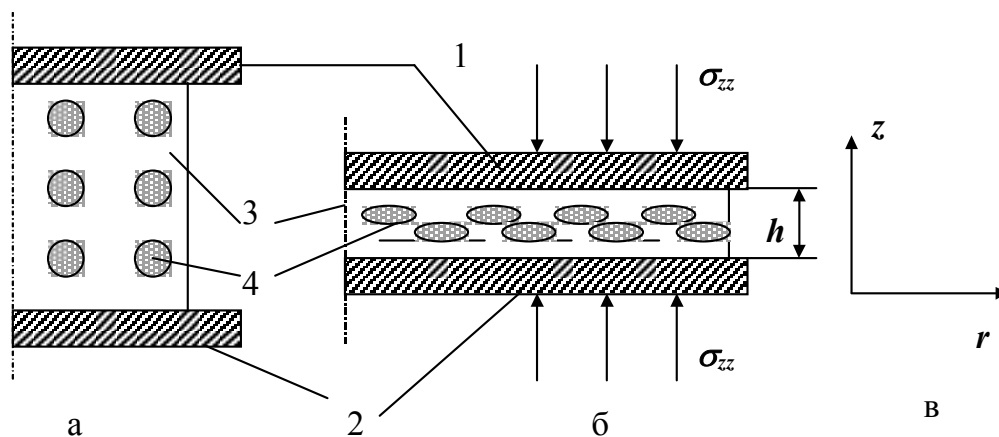


Рис.1. Схема осадки заготовки с жидкой фазой: 1 и 2 - бойки; 3 - твердая фаза; 4 - жидкая фаза (размер частиц утрирован); а - стадия осадки высокой заготовки; б - стадия осадки низкой заготовки; в - принятая система координат

В проведенных экспериментах подвергали горячей изотермической осадке заготовки из сплавов типа R-Fe-B в интервале отношения $D/H = 0,5...12$ (D и H - соответственно диаметр и высота заготовки). Пластическая деформация высоких заготовок и даже заготовок умеренной высоты (при непрерывном увеличении D/H от 0,5 до 10) при 800°C не сопровождалась вытеканием жидкой фазы за пределы деформируемого объема. При достижении $D/H = 10...12$ наблюдали вытекание жидкой фазы за пределы очага деформации даже при использовании медных и стальных оболочек (оболочки вдоль контактной поверхности, а также поверхность бойков, выполненных из нимоника, размывались потоком расплава). Процесс истечения расплава мог продолжаться даже при сохранении давления пресса постоянным в течение некоторого промежутка времени. Последнее обстоятельство применительно к твердым средам обычно относят к проявлению эффекта ползучести.

На рис.2. отображена предлагаемая схема отражения последовательности явлений в рассматриваемой среде. Здесь отмечено, что вначале можно определить градиенты гидростатических напряжений в пластически деформируемой среде, на основе полученных данных определить градиенты изменения объема, затем определить градиенты напряжений в жидкости и наконец, рассчитать кинематику истечения этой жидкости из пор, с применением законов гидродинамики, например, закона Дарси.

В первом приближении может быть рассмотрена только деформация пористого скелета, без учета гидравлического сопротивления жидкой фазы. Как показано в работах по деформации пористых заготовок, например в [6,7], в ходе осадки пористая заготовка подвергается уплотнению под действием нормальных напряжений со стороны плит или бойков, а также под действием напряжений трения на контактных

поверхностях. На первый взгляд жидкая фаза, заполняющая поровое пространство, совместно с пластически деформируемым скелетом образует несжимаемую среду, однако часть жидкой фазы выдавливается под действием сжимающих напряжений на свободную поверхность заготовки, что наблюдается в опытах. В связи с этим заготовка приобретает свойства сжимаемой среды.

Как было указано выше, наиболее интересной для исследования частью процесса деформации является осадка низких заготовок. Следует отметить, что в механике сплошной среды уравнения теорий деформированного и напряженного состояний строятся независимо друг от друга, а в случае необходимости совместное решение достигается применением уравнений связи. Решения краевых задач, полученные только с помощью теории напряженного состояния, действительны как для сжимаемой, так и несжимаемой среды. Это дает возможность применить некоторые имеющиеся решения краевых задач без нарушения существующих гипотез и допущений, что и будет ниже осуществлено.

Для осадки высокого цилиндра необходимы относительно невысокие напряжения, соизмеримые с сопротивлением деформации σ_s материала каркаса. Такой невысокий уровень напряжений достаточен для деформации собственно каркаса, но недостаточен для выдавливания жидкой фазы из порового пространства. В результате заготовка деформируется подобно сплошному телу. По мере уменьшения высоты и увеличения контактной поверхности происходит рост как осевых σ_{zz} , так и радиальных σ_{rr} , а также тангенциальных $\sigma_{\varphi\varphi}$ напряжений, что увеличивает среднее нормальное напряжение σ в каркасе, поскольку $\sigma = (\sigma_{zz} + \sigma_{rr} + \sigma_{\varphi\varphi})/3$.

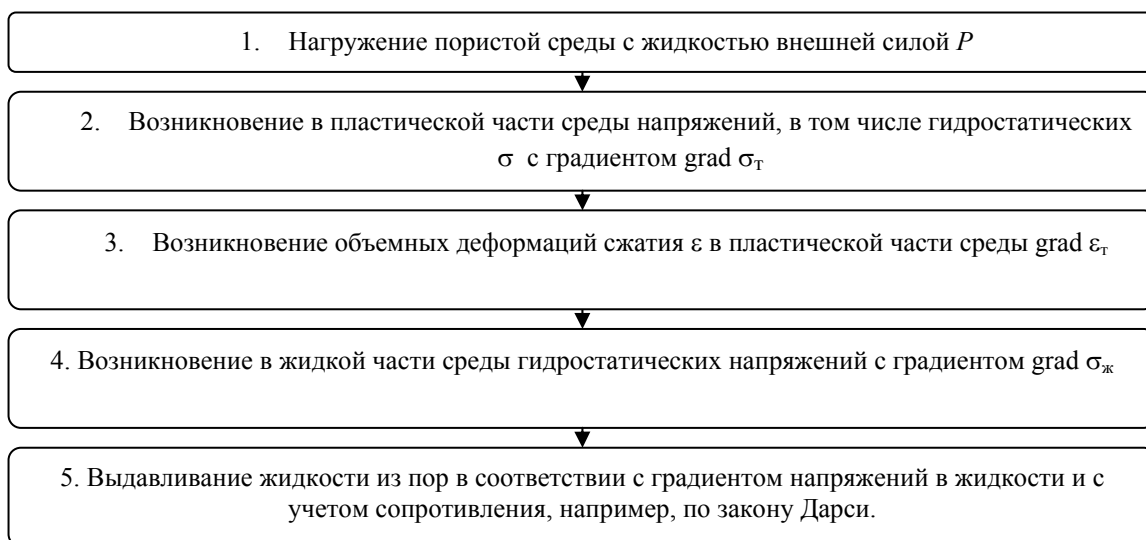


Рис.2. Последовательность явлений в рассматриваемой среде

Для оценки величины напряжений используем методику, приведенную в книге [8] со ссылкой на работы Т.Кармана и А.А.Ильюшина. При осадке тонкого кругового пластического слоя в условиях закона трения по Амонтону-Кулону распределение осевых напряжений по радиальной координате r ($r_1 < r < D/2$) подчиняется зависимости

$$\sigma_{zz} = -\sigma_s \cdot \exp\left(2 \cdot \mu \cdot \frac{D/2 - r}{h}\right) \quad \text{при } r_1 < r < D/2, \quad (1)$$

где μ - коэффициент трения по Кулону; r_1 - радиальная координата, характеризующая положение зоны затрудненной деформации.

При текущей координате r в пределах $0 < r < r_1$ характер эпюры иной. Исходя из экспериментальных эпюр касательных напряжений на поверхности бойка обычно принимают $\tau = \tau_k \cdot r/h$, где τ_k - напряжение трения при координате $r=r_1$. Интегрирование

$$\partial \sigma_{zz} / \partial r = -2 \cdot \tau / h \quad (2)$$

бесконечно малого элемента толщиной dr приводит к формуле

$$\sigma_{zz} = \sigma_{zz}^* - \tau_k \frac{r_1^2 - r^2}{h^2} \quad \text{при } 0 < r < r_1, \quad (3)$$

где σ_{zz}^* - напряжение, определяемое формулой (1) при $r=r_1$.

Из вышеприведенных формул следует, что эпюра напряжений имеет куполообразный характер, максимум напряжений наблюдается в центре заготовки при $r=0$.

К сожалению, в первоисточниках ограничиваются нахождением осевого напряжения как энергосилового параметра процесса, необходимого для определения усилия. В анализируемом случае необходимо оценить гидростатическое напряжение для оценки возможного уплотнения среды, а для этого необходимо найти дополнительные компоненты тензора напряжений.

При осесимметричной осадке из равенства радиальных и тангенциальных скоростей деформаций после рассмотрения уравнений связи напряжений и скоростей деформаций получаем равенство радиальных и тангенциальных напряжений: $\sigma_{rr} = \sigma_{\varphi\varphi}$, а в методе тонких сечений осевые и радиальные напряжения связаны условием текучести Мизеса $\sigma_{zz} - \sigma_{rr} = \pm \sigma_s$, откуда

$$\sigma_{rr} = \sigma_{zz} + \sigma_s = \sigma_s \cdot \left[1 - \exp\left(2 \cdot \mu \cdot \frac{D/2 - r}{h}\right)\right] \quad \text{при } r_1 < r < D/2, \quad (4)$$

$$\sigma_{rr} = \sigma_{zz} + \sigma_s = \sigma_{zz}^* - \tau_k \frac{r_1^2 - r^2}{h^2} + \sigma_s \quad \text{при } 0 < r < r_1, \quad (5)$$

а с использованием последней записи относительное среднее нормальное напряжение

$$\frac{\sigma}{\sigma_s} = \frac{\sigma_{zz} + \sigma_{\varphi\varphi} + \sigma_{rr}}{3 \cdot \sigma_s} = \frac{2}{3} - \exp\left(2 \cdot \mu \cdot \frac{D/2 - r}{h}\right) \quad \text{при } r_1 < r < D/2, \quad (6)$$

$$\frac{\sigma}{\sigma_s} = \frac{\sigma_{zz}^*}{\sigma_s} - \frac{\psi}{\sqrt{3}} \cdot \frac{r_1^2 - r^2}{h^2} + \frac{2}{3} \quad \text{при } 0 < r < r_1, \quad (7)$$

где ψ - коэффициент трения по Зибелю.

Гистограммы зависимостей (рис.3), построенные в соответствии с

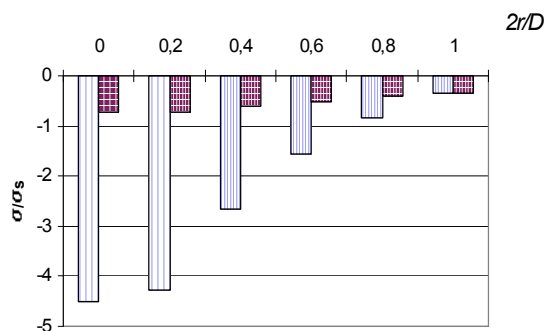


Рис.3. Гистограмма относительных средних нормальных напряжений по радиальной координате при $\mu=0,2$, $\psi=0,4$: серия низких столбцов при $D/h=2$; серия высоких столбцов при $D/h=10$

последними формулами для конкретных вариантов осадки, иллюстрируют сильное влияние фактора формы очага деформации D/h на сами значения гидростатического напряжения и величину его градиента по радиальной координате. Для случая осадки заготовки умеренной высоты среднее нормальное напряжение оказывается даже ниже сопротивления деформации.

Для низкой заготовки разница между максимальным в центре и минимальным на периферии значениями среднего нормального напряжения достигает десятикратного значения, а сами величины средних нормальных напряжений в среднем по очагу деформации намного превышают сопротивление деформации. В статье [7] было подтверждено наличие таких градиентов при решении задачи плоской осадки сжимаемого пластического слоя методом жестких блоков.

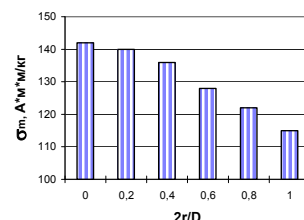


Рис.4. Гистограмма максимальной удельной намагниченности по относительной радиальной

Из теории деформации сжимаемых сред известно, что приложение среднего нормального напряжения σ в пластической области приводит к повышению плотности заготовок, причем чем больше (по модулю) значение гидростатического напряжения, тем к большему уплотнению приводит это воздействие. Поэтому при осадке низкой

пористой заготовки уплотнение начинается из центра заготовки и распространяется к периферии по мере роста напряжений. Если в поровом пространстве содержится жидкая фаза 4 (рис.1), то за счет уменьшения объема пор происходит ее выжимание на периферию заготовки, что и наблюдается в опытах осадки заготовок из сплава R-Fe-B. На бойках обычно явно видны следы потоков жидкости вдоль поверхности бойка по направлению к периферии. Химическая активность фазы довольно велика, из-за чего материал бойков (жаропрочный никелевый сплав) подвергается эрозии в виде радиально расположенных каналов.

Наибольшее количество жидкой фазы удаляется из областей повышенного среднего нормального напряжения, созданным действием напряжений σ_{zz} , σ_{rr} , $\sigma_{\phi\phi}$, т.е. из центральной части заготовки, где и наблюдаются повышенные магнитные свойства. С позиций механики сплошных сред это явление объясняется следующим образом. Опишем зависимость между плотностью ρ и средним нормальным напряжением σ системой уравнений:

$$\rho = \rho_0 \text{ при } |\sigma| < |\sigma_0|; \quad (8)$$

$$\rho = a\sigma^b \text{ при } |\sigma| > |\sigma_0|; \quad (9)$$

где ρ_0 - исходная плотность пористой заготовки; a и b - эмпирические коэффициенты; σ_0 - критическое среднее нормальное напряжение.

Уравнение (8) описывает ситуацию, когда средние нормальные напряжения в пористом теле имеются, но они недостаточно велики для изменения плотности. Именно эта ситуация имеет место при осадке высокого цилиндра. По мере осадки среднее нормальное напряжение по модулю увеличивается, и при превышении критического напряжения σ_0 в соответствии с формулой (9) начинается процесс уплотнения, который сопровождается вытеснением жидкой фазы из порового пространства, при этом текущая пористость P связана с плотностью соотношением $P = 1 - \rho/\rho_k$. ρ_k - плотность компактного материала.

Естественно, что количество вытесненной жидкой фазы из объемов с пониженной пористостью (центр заготовки) окажется выше, чем в зонах с повышенной пористостью (периферия заготовки). Выполненные эксперименты позволили установить величину критического напряжения: $\sigma_0 = 300 \text{ МПа}$.

Превышение средним нормальным напряжением величины σ_0 является необходимым, но недостаточным признаком для осуществления процесса выдавливания жидкой фазы. Действительно, можно представить себе ситуацию, когда гидростатические напряжения окажутся весьма велики, но истечения жидкой среды из пористого каркаса не произойдет, т.к. не обеспечен выход жидкой фазы из каркаса, либо отсутствует возможность перетекания из областей, подвергнутых большому объемному сжатию каркаса, в области с малым объемным сжатием.

Качественный характер кинематики течения жидкой фазы можно описать следующим образом. В первом приближении допустим, что течение жидкой фазы осуществляется лишь в направлении координаты r , что в действительности имеет место, если пренебречь влиянием оболочки. Применим линейный закон Дарси фильтрации вязкой жидкости через пористую среду [9]:

$$\text{grad} \tilde{\sigma} = - \frac{f}{k_f} \cdot v_{rж}, \quad (10)$$

где f - кинематическая вязкость жидкости, k_f - коэффициент проницаемости, $v_{rж}$ - радиальная компонента вектора скорости течения жидкой фазы; $\tilde{\sigma}$ - гидростатическое давление в жидкой фазе.

Знак минус свидетельствует о том, что градиент напряжений и вектор скорости противонаправлены: жидкость течет в направлении меньших давлений. Формула (10) показывает, что процесс выдавливания жидкой фазы может занять довольно продолжительное время ($v_{rж} \rightarrow 0$), если градиент давлений в жидкости окажется чрезмерно мал. Действительно, в опытах осадки высоких цилиндров из сплава, несмотря на продолжительную выдержку под давлением, выдавливания жидкой фазы не наблюдалось.

График на рис.4 иллюстрирует уровень магнитной характеристики - максимальной удельной намагниченности вдоль радиальной координаты, что согласуется с характером распределения среднего нормального напряжения, иллюстрируемого зависимостью на рис.3.

Таким образом, установлено, что процесс выдавливания жидкой фазы при осадке структурно неоднородной заготовки связан с уменьшением высоты заготовки ниже критического значения, нарастанием уровня средних нормальных напряжений, приводящем к объемной деформации пористой структуры, нарастанию вследствие этого давления в жидкой фазе, созданию в ней градиента напряжений, приводящего к истечению этой фазы за пределы очага деформации.

Выше было отмечено, что горячей пластической деформацией магнитно-твердых сплавов можно добиться существенного повышения магнитных характеристик. Известно, что наиболее высокие значения магнитной энергии получены у материалов на основе сплавов РЗМ-железо-бор (РЗМ - редкоземельный металл: неодим, празеодим). Для достижения высоких магнитных характеристик в сплавах этого типа необходимо создание определенной микроструктуры определенного фазового состава. Одним из методов получения такой структуры является закалка металла с высокими скоростями охлаждения. Реально последнее достигается охлаждением частиц расплава с получением порошков или гранул, которые впоследствии компактируют в изделия заданной формы. С целью дальнейшего повышения магнитных характеристик применяют формование изделий в магнитном поле.

Такая технология была опробована и внедрена в условиях ИФМ УрО РАН. Другим способом получения постоянных магнитов из сплавов этого типа является следующая последовательность операций: отливка цилиндрических заготовок, нагрев до 950°C, деформация при этой температуре, отжиг [10]. Обработка литых, а не порошковых заготовок устраняет опасность окисления и возгорания порошка, поэтому в некоторых случаях предпочтительна. При горячей осадке происходят следующие процессы, которые позволяют влиять на магнитные характеристики: формируется кристаллографическая текстура деформации, т.е. происходит выстраивание осей c основной фазы (являющихся осями легкого намагничивания) вдоль направления сжатия.

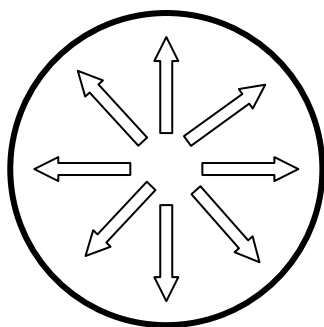


Рис.5. Направление перемещения потоков жидкой фазы на контактной поверхности заготовок

Это приводит к повышению остаточной индукции B_r . Дополнительное увеличение B_r происходит в результате перераспределения фаз в заготовке. Одна из немагнитных фаз плавится при температуре ниже температуры деформации (ее температура плавления около 550°C). При горячей деформации происходит выжимание этой фазы к периферии заготовки (рис.5), в результате чего удельный объем основной ферромагнитной фазы в центре заготовки увеличивается и обуславливает повышение индукции. Вторым фактором, влияющим на коэрцитивную силу H_c , является изменение микроструктуры (размер зерен, толщина и состав межзеренных прослоек). Интенсивность выжимания жидкой фазы влияет и на H_c , т.к. при малом ее количестве может происходить рост зерен при отжиге и нарушение их магнитной изоляции, что приводит к снижению H_c .

Условия проведения опытов заключались в следующем. Выплавляли сплав состава (мас.%) празеодим 40, В 0,9, железо – остальное, отливали слиток диаметром 12мм длиной 100мм, нарезами заготовки мерных длин. Заготовки помещали в предварительно нагретую до 700°C оснастку установки изотермической деформации на базе испытательной машины УМЭ-10ТМ. Перемещали бойки до соприкосновения с торцами заготовок. Нагревали заготовки до температуры нагрева

оснастки. При скорости $2 \cdot 10^{-2} \text{ с}^{-1}$ осаживали заготовки до различных отношений диаметра D к высоте H при поддержании постоянной степени деформации $\square = 80\%$. После осадки и отжига при 950°C в течение 2 часов из полученных дисков вырезали образцы для магнитных испытаний, которые производили на вибромагнитометре¹, их результаты приведены в табл.1.

Как видно из таблицы, при увеличении D/H B_r имеет тенденцию к росту вплоть до достижения D/H значения 16, после чего рост сменяется падением. Такой же характер имеет зависимость магнитной энергии от параметра D/H . Отсюда можно сделать вывод о наличии интервала оптимальных значений D/H в пределах 12...16.

В другой серии опытов завершали осадку при отношении $D/H=16$, с варьированием температуры осадки в диапазоне 500-700°C при прочих равных условиях проведения опытов. Как видно из рассмотрения табл.2, при температуре 500°C получены низкие магнитные свойства.

Таблица 1
Магнитные свойства в зависимости от относительного диаметра заготовок при температуре 700°C

Характеристика	Отношение D/H				
	10	12	14	16	18
Магнитная индукция B_r , Тл	1,05	1,15	1,20	1,23	1,17
Коэрцитивная сила, H_c , МА/м	0,64	0,64	0,8	0,8	0,4
Магнитная энергия, $(BH)_{max}$, кДж/м ³	160	240	280	300	150

Это обусловлено слишком низкой температурой, при которой жидкая фаза образуется в недостаточном количестве. В частности, ее малое количество резко снизило пластические свойства, следствием чего явилось интенсивное трещинообразование. При повышении температуры до 900°C выявили уменьшение $(BH)_{max}$ за счет падения коэрцитивной силы.

Таблица 2
Магнитные свойства в зависимости от температуры осадки при $D/H=16$

Характеристика	Температура, °C				
	500	600	700	800	900
Магнитная индукция B_r , Тл	0,7	1,10	1,23	1,15	1,05
Коэрцитивная сила, H_c , МА/м	0,16	0,56	0,80	0,62	0,44
Магнитная энергия, $(BH)_{max}$, кДж/м ³	40	200	300	220	150

Таким образом, были выявлены оптимальные условия пластической деформации

¹ Магнитные испытания проводились ИФМ УрО РАН

осадкой заготовок из сплава Pr-Fe-B: для получения наивысших магнитных характеристик завершение осадки должно происходить при отношении D/H в пределах 12...16 и при поддержании температуры деформации в пределах 600-800°C. Такие выводы были внедрены и защищены впоследствии патентом РФ [11].

Литература

1. Дзодзиев Г.Т., Кальков А.А., Сергеев Н.Н. и др. Спекание твердых сплавов в вакууме. В сб. трудов №14 ВНИИТС «Твердые сплавы и тугоплавкие металлы». М.: Металлургия, 1973. С.68-76.
2. Металлокерамические твердые сплавы. /Н.И.Романова, П.Г.Чекулаев, В.И.Дусев и др. М.: Металлургия, 1970. 352с.
3. Akioka K., Kobayashi O., Yamagami T., Agai A., Shimoda T. Hot workability of R-Fe-B alloys and their magnetic properties/ J.Appl. Phys., 1991, 69, N6, p.5829-5831.
4. Zhongmin Chen, Zhengxing Shi, Leyi Wang, Hengzhi Fu. Microstructure and magnetic properties developed by hot pressing of cast Pr-Fe-B magnets. / J.Appl. Phys., 1992, 71, N6, p.2799-2804.
5. Уймин М.А., Шангуров А.В., Логинов Ю.Н. Горячая деформация литых магнитотвердых сплавов Pr-Fe-B-Cu с различным содержанием бора. Физика металлов и металловедение. 1994, т.78, вып.2, с.107-112.
6. Логинов Ю.Н. Формоизменение пористого цилиндра при осадке. В межвуз.сб. "Обработка металлов давлением" Вып.13. Свердловск, изд. УПИ, 1986. 23-28с.
7. Логинов Ю.Н., Паршаков С.И. Экспериментальная проверка разрывного решения задачи плоской осадки сжимаемого материала. В сб. "Обработка металлов давлением". Вып.6. Труды вузов РСФСР, Свердловск, УПИ, 1979. С.22-27
8. Колмогоров В.Л. Механика обработки металлов давлением. М.: Металлургия, 1986. 688с.
9. Biot M.A. Theory elasticity and consolidation for a porous anisotropic solid. Journal of Appl Phys, 26, N2, 182-185(1955).
10. Акиока К., Кобаяси О., Ямагана Т. и др. Деформируемость сплавов РЗМ-железо-бор и их магнитные свойства. J. Appl. Phys., 1991, v.69, N8, pp.5829-5831.
11. Патент РФ №2048690/ Способ получения анизотропных постоянных магнитов на основе сплава редкоземельный металл-железо-бор. МКИ H01F 1/032